

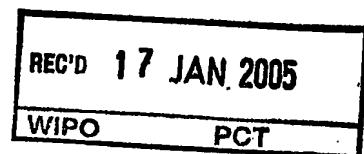


EP84/52942

BREVET D'INVENTION

CERTIFICAT D'UTILITÉ - CERTIFICAT D'ADDITION

COPIE OFFICIELLE



Le Directeur général de l'Institut national de la propriété industrielle certifie que le document ci-annexé est la copie certifiée conforme d'une demande de titre de propriété industrielle déposée à l'Institut.

Fait à Paris, le 24 NOV. 2004

BEST AVAILABLE COPY

PRIORITY DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

Pour le Directeur général de l'Institut
national de la propriété industrielle
Le Chef du Département des brevets

M. Hirsch

Martine PLANCHE

INSTITUT
NATIONAL DE
LA PROPRIÉTÉ
INDUSTRIELLE

SIEGE
26 bis, rue de Saint-Petersbourg
75800 PARIS cedex 08
Téléphone : 33 (0)1 53 04 53 04
Télécopie : 33 (0)1 53 04 45 23



**INSTITUT
NATIONAL DE
LA PROPRIÉTÉ
INDUSTRIELLE**

26 bis, rue de Saint Pétersbourg
75800 Paris Cedex 08
Téléphone : 01 53 04 53 04 Tél.

Téléphone : 01 53 04 53 04 Télécopie : 01 42 94 86 54

ENVOYÉE LE: 14/11/03

BREVET D'INVENTION

CERTIFICAT D'UTILITÉ

Code de la propriété intellectuelle - Livre VI



Nº 11354-01

REQUÊTE EN DÉLIVRANCE 1/2

Cet imprimé est à remplir lisiblement à l'encre noire.

DB 540 W /260893

REPRISE DES PIÈCES		Réservé à l'INPI		Cet imprimé est à remplir visuellement à l'encre noire	
DATE	14 NOVEMBRE 2003		DB 540 W /2608		
LIEU	INPI PARIS F		NOM ET ADRESSE DU DEMANDEUR OU DU MANDATAIRE		
N° D'ENREGISTREMENT	03 13370		À QUI LA CORRESPONDANCE DOIT ÊTRE ADRESSÉE		
NATIONAL ATTRIBUÉ PAR L'INPI		SOLVAY (Société Anonyme)			
DATE DE DÉPÔT ATTRIBUÉE PAR L'INPI		Direction Régionale pour la France			
14 NOV. 2003		12, Cours Albert Ier			
		F-75383 PARIS CEDEX 08 (France)			
Vos références pour ce dossier (facultatif) S 2003/42					
Confirmation d'un dépôt par télecopie		<input checked="" type="checkbox"/> N° attribué par l'INPI à la télecopie			
2 NATURE DE LA DEMANDE		Cochez l'une des 4 cases suivantes			
Demande de brevet		<input checked="" type="checkbox"/>			
Demande de certificat d'utilité		<input type="checkbox"/>			
Demande divisionnaire		<input type="checkbox"/>			
Demande de brevet initiale ou demande de certificat d'utilité initiale		N°	Date / /		
		N°	Date / /		
Transformation d'une demande de brevet européen Demande de brevet initiale		<input type="checkbox"/>	Date / /		
		N°	Date / /		
3 TITRE DE L'INVENTION (200 caractères ou espaces maximum)					
Catalyseur et procédé en phase gazeuse utilisant un tel catalyseur					
4 DÉCLARATION DE PRIORITÉ OU REQUÊTE DU BÉNÉFICE DE LA DATE DE DÉPÔT D'UNE DEMANDE ANTÉRIEURE FRANÇAISE		Pays ou organisation Date / / /	N°		
		Pays ou organisation Date / / /	N°		
		Pays ou organisation Date / / /	N°		
		<input type="checkbox"/> S'il y a d'autres priorités, cochez la case et utilisez l'imprimé «Suite»			
5 DEMANDEUR		<input type="checkbox"/> S'il y a d'autres demandeurs, cochez la case et utilisez l'imprimé «Suite»			
Nom ou dénomination sociale		SOLVAY			
Prénoms					
Forme juridique		Société Anonyme			
N° SIREN				
Code APE-NAF		. . .			
Adresse	Rue	Rue du Prince Albert, 33			
	Code postal et ville	1050	Bruxelles		
Pays		Belgique			
Nationalité		Belge			
N° de téléphone (facultatif)					
N° de télecopie (facultatif)					
Adresse électronique (facultatif)					

**BREVET D'INVENTION
CERTIFICAT D'UTILITÉ**

REQUÊTE EN DÉLIVRANCE 2/2

REMISE DES PIÈCES	Réervé à l'INPI
DATE	14 NOVEMBRE 2003
LEU	INPI PARIS F
N° D'ENREGISTREMENT	03 13370
NATIONAL ATTRIBUÉ PAR L'INPI	

DB 540 W /260399

Vos références pour ce dossier : <i>(facultatif)</i>		S 2003/42
6 MANDATAIRE		
Nom		
Prénom		
Cabinet ou Société		
N° de pouvoir permanent et/ou de lien contractuel		
Adresse	Rue	
	Code postal et ville	
N° de téléphone <i>(facultatif)</i>		
N° de télécopie <i>(facultatif)</i>		
Adresse électronique <i>(facultatif)</i>		
7 INVENTEUR (S)		
Les inventeurs sont les demandeurs		<input type="checkbox"/> Oui <input checked="" type="checkbox"/> Non Dans ce cas fournir une désignation d'inventeur(s) séparée
8 RAPPORT DE RECHERCHE		Uniquement pour une demande de brevet (y compris division et transformation)
Établissement immédiat ou établissement différé		<input checked="" type="checkbox"/> <input type="checkbox"/>
Paiement échelonné de la redevance		Paiement en deux versements, uniquement pour les personnes physiques
		<input type="checkbox"/> Oui <input checked="" type="checkbox"/> Non
9 RÉDUCTION DU TAUX DES REDEVANCES		Uniquement pour les personnes physiques <input type="checkbox"/> Requise pour la première fois pour cette invention (<i>joindre un avis de non-imposition</i>) <input type="checkbox"/> Requise antérieurement à ce dépôt (<i>joindre une copie de la décision d'admission pour cette invention ou indiquer sa référence</i>) :
Si vous avez utilisé l'imprimé «Suite», indiquez le nombre de pages jointes		
10 SIGNATURE DU DEMANDEUR OU DU MANDATAIRE (Nom et qualité du signataire)		VISA DE LA PRÉFECTURE OU DE L'INPI
SOLVAY (Société Anonyme)		<i>Yannick Manz</i>

Catalyseur et procédé en phase gazeuse utilisant un tel catalyseur

La présente invention se rapporte à un catalyseur et à un procédé en phase gazeuse utilisant un tel catalyseur.

Les réactions en phase gazeuse et en particulier les réactions d'oxydation font généralement appel à des catalyseurs comprenant des éléments actifs 5 déposés sur un support inerte. Parmi ceux-ci, on peut trouver l'alumine, les gels de silice, les oxydes mixtes ou encore les argiles ou autres supports d'origine naturelle.

Dans le cas particulier des réactions d'oxychloration d'hydrocarbures et 10 notamment de l'éthylène, à l'aide de chlorure d'hydrogène et d'air, ou d'oxygène, les catalyseurs constitués d'éléments actifs déposés sur un support inerte tel l'alumine ont rencontré un grand succès.

Ainsi, les demandes de brevet EP-A 255 156, EP-A-375 202, EP-A 494 15 474, EP-A-657 212 et EP-A 657 213, EP-A 1 155 740 décrivent des catalyseurs pour l'oxychloration de l'éthylène comprenant des éléments actifs déposés sur une alumine.

Dans les procédés d'oxychloration de l'éthylène à l'air ou à l'oxygène, il 20 est habituel de recycler les gaz de queue, après collecte du 1,2-dichloroéthane formé et abattement de l'eau et de tout ou partie du chlorure d'hydrogène non converti, pour valoriser l'éthylène non converti et pour éviter le traitement ou la mise à l'atmosphère de grandes quantités de gaz.

Dès lors qu'un gaz combustible est recyclé via un compresseur, la teneur 25 en oxygène de ce gaz joue un rôle clé pour sauvegarder la sécurité du système. En fonction des pressions et températures rencontrées, différentes limitations en teneur en oxygène s'imposent. On comprend dès lors qu'une marche avec un profil stable d'oxygène dans les gaz de queue constitue un avantage industriel important du point de vue de la sécurité et de la facilité de conduite d'un réacteur industriel et que celle-ci soit vivement recherchée.

Ainsi, on a maintenant trouvé de manière surprenante, un catalyseur 30 permettant de maintenir constante la teneur en oxygène dans les gaz de queue et donc dans les gaz recyclés.

A cet effet, la présente invention concerne un catalyseur contenant des éléments actifs déposés sur une alumine, ladite alumine contenant au moins 0,03 g de titane, exprimé sous forme métallique, par kg d'alumine sèche.

5 Par alumine, on entend désigner, aux fins de la présente invention, un composé de formule Al_2O_3 tel qu'il peut résulter de la calcination d'un hydrate d'alumine pouvant être par exemple représenté par la formule $\text{AlO(OH)}\cdot\text{H}_2\text{O}$.

10 L'alumine du catalyseur selon l'invention contient avantageusement au moins 0,03 g, de préférence au moins 0,05 g, de manière particulièrement préférée au moins 0,1 g et de manière tout particulièrement préférée au moins 0,2 g, exprimé sous forme métallique, par kg d'alumine sèche.

15 Par alumine sèche, on entend désigner, aux fins de la présente invention, une alumine de formule Al_2O_3 activée suite à une calcination et se caractérisant par une surface spécifique non nulle, avantageusement comprise entre 50 et 300 m^2/g .

15 L'alumine du catalyseur selon l'invention contient avantageusement au plus 15 g, de préférence au plus 5 g et de manière particulièrement préférée au plus 1,5 g, exprimé sous forme métallique, par kg d'alumine sèche.

20 La teneur en titane dans l'alumine peut être mesurée par toute technique appropriée. La teneur en titane dans l'alumine est de préférence mesurée par spectrométrie d'émission atomique avec torche à plasma (ICP-OES).

L'alumine peut être de toute origine et peut être obtenue selon tout procédé connu pour autant qu'elle satisfasse aux teneurs en titane mentionnées ci-dessus. L'alumine peut être en tout ou en partie de type η , γ , ε ou δ . Elle est de préférence de type γ .

25 L'alumine du catalyseur selon l'invention présente en outre avantageusement un diamètre moyen des particules compris entre 5 et 200 μm , de préférence entre 20 et 120 μm . Le diamètre moyen des particules est de préférence mesuré sur tamis vibrants à sec.

30 La surface spécifique de l'alumine mesurée suivant la méthode B.E.T à l'azote est avantageusement comprise entre 50 m^2/g et 300 m^2/g , de préférence entre 75 et 250 m^2/g et de manière particulièrement préférée entre 100 m^2/g et 210 m^2/g .

35 Le volume poreux de l'alumine du catalyseur selon l'invention se situe avantageusement entre 0,1 et 1 cm^3/g , de préférence entre 0,2 et 0,8 cm^3/g et de manière particulièrement préférée entre 0,25 et 0,6 cm^3/g .

Enfin, le poids spécifique par écoulement libre de l'alumine du catalyseur selon l'invention varie avantageusement entre 0,5 et 1 kg/dm³, de préférence entre 0,6 et 0,9 kg/dm³ et de manière particulièrement préférée entre 0,65 et 0,75 kg/dm³.

5 Il est à noter que l'alumine du catalyseur selon l'invention peut contenir en outre une quantité plus ou moins importante d'atomes autres que le titane, tels que des atomes d'éléments alcalins, de silicium ou de fer, ayant pu être introduits à l'une des étapes de fabrication de l'hydrate d'alumine.

10 Dans le catalyseur selon l'invention, les éléments actifs sont avantageusement au moins au nombre de 2 et ils sont avantageusement choisis parmi le cuivre, les métaux alcalins, les métaux alcalino-terreux, les métaux de terre rare et les métaux du groupe constitué par le ruthénium, le rhodium, le palladium, l'osmium, l'iridium, le platine et l'or.

15 Les éléments actifs du catalyseur selon l'invention sont avantageusement présents dans le catalyseur sous forme de sels, de préférence sous forme de chlorures.

Par métaux alcalins, on entend désigner les éléments du Groupe Ia du tableau périodique. Parmi les métaux alcalins préférés, on peut citer le potassium, le sodium, le lithium et le césium.

20 Par métaux alcalino-terreux, on entend désigner les éléments du Groupe IIa du tableau périodique. Parmi les métaux alcalino-terreux préférés, on peut citer le magnésium, le calcium, le barium et le strontium. Le magnésium est particulièrement préféré.

25 Par métaux de terre rare, on entend désigner les éléments 57 à 71 du tableau périodique ainsi que leurs mélanges.

Dans le catalyseur selon l'invention, les éléments actifs sont de préférence choisis parmi le cuivre, les métaux alcalins, les métaux alcalino-terreux et les métaux de terre rare.

30 Dans le catalyseur selon l'invention, les éléments actifs sont de manière particulièrement préférée le cuivre, éventuellement le magnésium, au moins un métal alcalin et éventuellement au moins un métal de terre rare.

De manière tout particulièrement préférée, les éléments actifs sont le cuivre, le magnésium, au moins un métal alcalin et éventuellement au moins un métal de terre rare.

35 De manière tout tout particulièrement préférée, les éléments actifs sont le cuivre, le magnésium et au moins un métal alcalin.

Les catalyseurs contenant les éléments actifs suivants ont donné de bons résultats : cuivre/magnésium/potassium, cuivre/magnésium/sodium ; cuivre/magnésium/lithium, cuivre/magnésium/césium, cuivre/magnésium/sodium/lithium, cuivre/magnésium/potassium/lithium et cuivre/magnésium/césium/lithium.

5 La teneur en cuivre, calculée sous forme métallique, est avantageusement comprise entre 30 et 90 g/kg, de préférence entre 40 et 75 g/kg et de manière particulièrement préférée entre 50 et 70 g/kg du catalyseur.

10 La teneur en magnésium, calculée sous forme métallique, est avantageusement comprise entre 10 et 30 g/kg, de préférence entre 12 et 25 g/kg et de manière particulièrement préférée entre 15 et 20 g/kg du catalyseur.

15 La teneur en métal(aux) alcalin(s), calculée sous forme métallique, est avantageusement comprise entre 0,1 et 30 g/kg, de préférence entre 0,5 et 20 g/kg et de manière particulièrement préférée entre 1 et 15 g/kg du catalyseur.

20 15 Les rapports atomiques Cu:Mg:métal(aux) alcalin(s) sont habituellement 1:0,1-2:0,05-2, de préférence 1:0,2-1,5:0,1-1,5 et de manière particulièrement préférée 1:0,5-1:0,15-1.

25 Le catalyseur selon l'invention présente avantageusement une surface spécifique mesurée selon la méthode B.E.T. à l'azote comprise entre 25 m²/g et 300 m²/g, de préférence entre 50 et 200 m²/g et de manière particulièrement préférée entre 75 et 175 m²/g.

30 25 Le mode d'obtention du catalyseur selon l'invention n'est pas critique en soi. Un mode d'obtention préféré consiste à imprégner une alumine selon l'invention avec une solution aqueuse renfermant les quantités désirées de sels des éléments actifs du catalyseur. Différents additifs dont l'acide chlorhydrique peuvent être ajoutés à la solution aqueuse. L'imprégnation peut être réalisée en une ou plusieurs étapes. Elle est de manière préférée réalisée en une seule étape. L'imprégnation est de manière particulièrement préférée suivie d'une étape de séchage du catalyseur obtenu.

35 30 Les sels des éléments actifs utilisés pour imprégner l'alumine peuvent être des oxydes, des hydroxydes, des nitrates, des carbonates, des acétates ou des chlorures. Ils sont de manière préférée des chlorures.

35 L'imprégnation s'effectue avantageusement à une température supérieure à la température ambiante pour favoriser la solubilité des sels imprégnants.

35 35 L'apparition d'une phase liquide non adsorbée par le solide est avantageusement

évitée en limitant le volume de la solution imprégnante à 70 à 100 % du volume poreux de la quantité d'alumine mise en œuvre.

L'invention concerne en outre l'utilisation d'une alumine selon l'invention comme support de catalyseur selon l'invention.

5 A cet effet, l'invention concerne l'utilisation d'une alumine contenant au moins 0,03 g de titane, exprimé sous forme métallique, par kg d'alumine sèche, comme support de catalyseur.

Le catalyseur selon l'invention peut être mis en œuvre dans tout procédé faisant intervenir une réaction en phase gazeuse.

10 C'est pourquoi l'invention concerne également un procédé faisant intervenir une réaction en phase gazeuse selon lequel la réaction en phase gazeuse est catalysée par le catalyseur selon l'invention.

15 La réaction en phase gazeuse est de préférence une réaction d'oxydation d'un hydrocarbure, de manière particulièrement préférée une réaction d'oxychloration d'un hydrocarbure contenant de 1 à 4 atomes de carbone.

Parmi les hydrocarbures contenant de 1 à 4 atomes de carbone, on peut citer le méthane, l'éthane, l'éthylène, le propane, le propylène, les butènes, l'acétylène, le chloroéthane, le chloropropane, le dichlorométhane et le dichloroéthane.

20 De manière tout particulièrement préférée, la réaction en phase gazeuse est la réaction d'oxychloration de l'éthylène en 1,2-dichloroéthane.

La réaction d'oxychloration peut avoir lieu en lit fixe ou lit fluide.

Si la réaction a lieu en lit fixe, le catalyseur selon l'invention est de préférence sous la forme de granules ou de pastilles de toute forme. Si la réaction a lieu en lit fluide, le catalyseur selon l'invention est de préférence sous la forme de poudre.

La réaction d'oxychloration a de préférence lieu en lit fluide.

30 L'oxygène moléculaire nécessaire à la réaction d'oxychloration est avantageusement introduit dans le réacteur, soit dilué, par exemple sous forme d'air, soit pur. L'oxygène est de préférence introduit pur dans le réacteur.

La température à laquelle s'effectue la réaction d'oxychloration se situe habituellement entre 200 et 300 °C, de préférence entre 220 et 280 °C, de manière particulièrement préférée entre 230 et 270 °C.

35 La pression à laquelle est effectuée la réaction d'oxychloration n'est pas critique en elle-même. Habituellement, on opère avec des pressions comprises entre 0,1 et 1 MPa et de préférence entre 0,1 et 0,8 MPa.

La vitesse de fluidisation du catalyseur selon l'invention lors de la réaction d'oxychloration n'est pas critique en elle-même. Son choix dépend essentiellement de la granulométrie du catalyseur et des dimensions de l'appareillage. Généralement, on opère avec des vitesses comprises entre 5 et

5 100 cm/s.

Enfin, le rapport des réactifs mis en oeuvre pour la réaction d'oxychloration est le même que celui généralement utilisé dans les procédés antérieurs. D'habitude, on opère avec un léger excès d'éthylène par rapport à la quantité stoechiométrique nécessaire pour réagir avec l'HCl mis en œuvre.

10 Toutefois, le catalyseur selon l'invention permet indifféremment de travailler avec des excès importants d'éthylène ou au voisinage de la stoechiométrie, voire même en excès d'HCl.

15 Le catalyseur selon l'invention présente non seulement l'avantage de procurer au procédé dans lequel il est utilisé, un profil stable de l'oxygène dans les gaz de queue et donc dans les gaz recyclés mais également d'assurer une teneur stable en éthylène dans ces gaz. Ceci représente un avantage économique car le rapport entre le chlorure d'hydrogène et l'éthylène total (recyclage compris) envoyé au réacteur est un paramètre principal de la conduite efficace d'un réacteur d'oxychloration : il détermine le rendement par le biais de la 20 conversion. Un excès incontrôlé peut induire différents problèmes tels que de la corrosion et des prises en masse dans le cas du lit fluide. Il est aussi évident qu'une variation continue représentée, pour être compensée en temps réel, une charge de travail accrue, évitée dans le cas de la présente invention.

25 Les exemples qui suivent sont destinés à illustrer l'invention sans pour autant en limiter la portée.

Exemple 1 (selon l'invention)

30 Un catalyseur a été préparé au départ d'une alumine hydratée du type PURAL SCC 30 commercialisée par SASOL (ex-CONDEA Chemie GmbH) qui a été calcinée de façon à obtenir une alumine sèche présentant une surface spécifique de $180 \text{ m}^2/\text{g}$. Cette alumine contenait 1,13 g de titane, exprimé sous forme métallique, par kg d'alumine sèche. La teneur en titane a été mesurée par spectrométrie d'émission atomique avec torche à plasma (ICP-OES). Cette alumine présentait les autres caractéristiques suivantes : volume poreux = 35 $0,35 \text{ cm}^3/\text{g}$; poids spécifique par écoulement libre de $0,7 \text{ kg/dm}^3$ et diamètre moyen des particules = 47 μm .

A environ 750 g de cette alumine a été ajoutée une solution aqueuse d'imprégnation comprenant à l'état dissous 162 g de $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, 144 g de $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 17,2 g de KCl et 10,6 g de LiCl. Le solide humide a ensuite été chauffé à 180 °C pendant 18 h. 1 kg de catalyseur a été ainsi obtenu avec, 5 calculée sous forme métallique par rapport au poids total du catalyseur, une teneur en cuivre de 60 g/kg, une teneur en magnésium de 17 g/kg, une teneur en potassium de 9 g/kg et une teneur en lithium de 1,75 g/kg. Exprimée en rapport atomique, la proportion des différents métaux Cu:Mg:K:Li était de 1:0,74:0,24:0,26.

10 Exemple 2 (selon l'invention)

Environ 16 tonnes du catalyseur préparé suivant la méthode détaillée à l'exemple 1 ont été disposées dans un réacteur d'oxychloration industriel de l'éthylène en lit fluide en 1,2-dichloroéthane.

Dans ce réacteur, les gaz ont été introduits par le bas à travers un dispositif 15 de distribution des gaz. Les conditions opératoires dans lesquelles a été réalisé l'exemple 2 sont les suivantes :

- débit des réactifs (t/h) : $\text{C}_2\text{H}_4/\text{HCl}/\text{O}_2$: 2,7/7,5/1,9
- température : 246 °C
- pression : 0,49 MPa
- 20 - vitesse de fluidisation : 33 cm/s
- temps de contact : 26 s.

Les paramètres de marche de la réaction d'oxychloration ont été observés 25 pendant 24 heures et sont illustrés à la figure 1 qui représente la variation de la teneur (% en volume) en oxygène (tracé A) ainsi que de la teneur en éthylène (% en volume) (tracé B) dans les gaz de queue pendant une durée de 24 heures (l'abscisse représente le moment en hh.mm). On peut y voir que les teneurs en oxygène et en éthylène dans les gaz de queue sont restées raisonnablement constantes au cours du temps.

30 Exemple 3 (comparatif)

Un catalyseur a été préparé selon le même mode opératoire qu'à l'exemple 1 au départ d'une alumine hydratée du type PURAL SCC 30 commercialisée par SASOL (ex-CONDEA Chemie GmbH) qui a été calcinée de façon à obtenir une alumine sèche présentant une surface spécifique de 180 m^2/g . A la différence de l'alumine selon l'exemple 1, l'alumine concernée dans l'exemple 3 contenait 35 0,015 g de titane, exprimé sous forme métallique, par kg d'alumine sèche. La teneur en titane a également été mesurée par spectrométrie d'émission atomique

avec torche à plasma (ICP-OES). Cette alumine présentait les autres caractéristiques suivantes : volume poreux = 0,35 cm³/g ; poids spécifique par écoulement libre de 0,70 kg/dm³ et diamètre moyen des particules = 46 µm.

Exemple 4 (comparatif)

5 Environ 16 tonnes du catalyseur préparé suivant la méthode détaillée à l'exemple 3 ont été disposées dans le même réacteur que celui décrit à l'exemple 2.

Dans ce réacteur, les gaz ont été introduits par le bas à travers un dispositif de distribution des gaz. Les conditions opératoires dans lesquelles a été réalisé

10 l'exemple 4 sont les suivantes :

- débit des réactifs (t/h) : C₂H₄/HCl/O₂ : 3/8,5/2,1
- température : 250 °C
- pression : 0,52 MPa
- vitesse de fluidisation : 33 cm/s
- temps de contact : 26 s.

15 Les paramètres de marche de la réaction d'oxychloration ont été observés pendant 24 heures et sont illustrés à la figure 2 qui représente la variation de la teneur (% en volume) en oxygène (tracé A) ainsi que de la teneur en éthylène (% en volume) (tracé B) dans les gaz de queue pendant une durée de 24 heures (l'abscisse représente le moment en hh.mm). La variation de la teneur en oxygène dans les gaz de queue fut impressionnante. Elle est passée régulièrement très rapidement de moins de 0,8 à plus de 2 % en volume et vice-versa, exigeant de l'opérateur des corrections incessantes pour ne pas déclencher l'unité par des sécurités automatiques. La teneur en éthylène dans les gaz de queue a également montré des variations brutales rapides entre 6-7 % en volume et plus de 9 % en volume.

RE VENDICATIONS

1 - Catalyseur contenant des éléments actifs déposés sur une alumine, ladite alumine contenant au moins 0,03 g de titane, exprimé sous forme métallique, par kg d'alumine sèche.

5 2 - Catalyseur selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'alumine contient au plus 15 g de titane, exprimé sous forme métallique, par kg d'alumine sèche.

10 3 - Catalyseur selon l'une quelconque des revendications 1 à 2, caractérisé en ce que l'alumine contient au moins 0,05 g de titane, exprimé sous forme métallique, par kg d'alumine sèche.

4 - Catalyseur selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que l'alumine contient au plus 5 g, exprimé sous forme métallique, par kg d'alumine sèche.

15 5 - Catalyseur selon l'une quelconque des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que les éléments actifs sont au moins au nombre de 2 et sont choisis parmi le cuivre, les métaux alcalins, les métaux alcalino-terreux, les métaux de terre rare et les métaux du groupe constitué par le ruthénium, le rhodium, le palladium, l'osmium, l'iridium, le platine et l'or.

20 6 - Catalyseur selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, caractérisé en ce que les éléments actifs sont choisis parmi le cuivre, les métaux alcalins, les métaux alcalino-terreux et les métaux de terre rare.

7 - Catalyseur selon l'une quelconque de revendications 1 à 6, caractérisé en ce que les éléments actifs sont le cuivre, le magnésium et au moins un métal alcalin.

25 8 - Utilisation d'une alumine contenant au moins 0,03 g de titane, exprimé sous forme métallique, par kg d'alumine sèche, comme support de catalyseur.

9 - Procédé faisant intervenir une réaction en phase gazeuse caractérisé en ce que la réaction en phase gazeuse est catalysée par un catalyseur selon l'une quelconque des revendications 1 à 7.

10 - Procédé selon la revendication 9, caractérisé en ce que la réaction en phase gazeuse est une réaction d'oxydation d'un hydrocarbure.

11 - Procédé selon l'une quelconque des revendications 9 à 10, caractérisé en ce que la réaction en phase gazeuse est une réaction d'oxychloration d'un hydrocarbure contenant de 1 à 4 atomes de carbone.

12 - Procédé selon l'une quelconque des revendications 9 à 11, caractérisé en ce que la réaction en phase gazeuse est la réaction d'oxychloration de l'éthylène en 1,2-dichloroéthane.

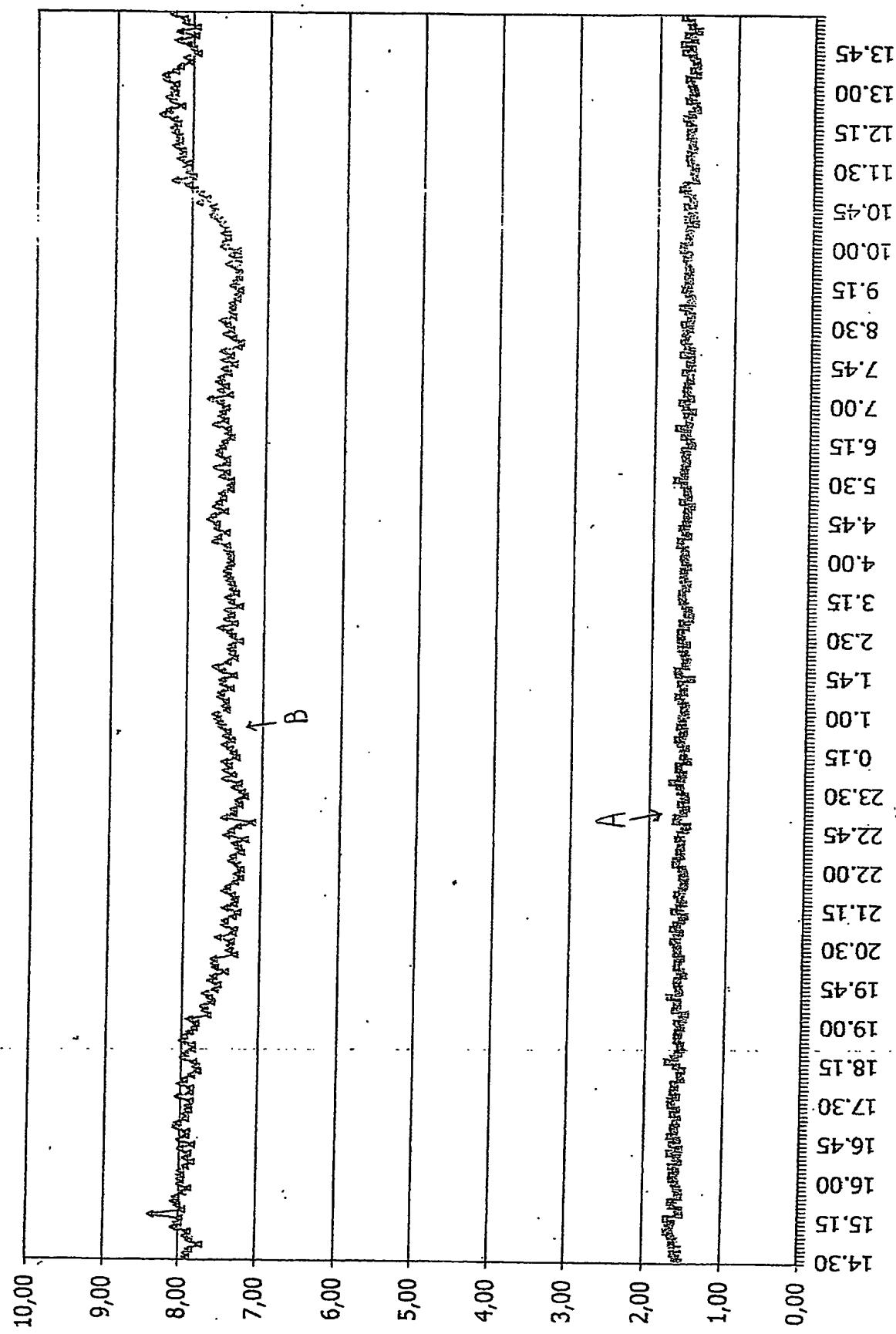


Figure 1

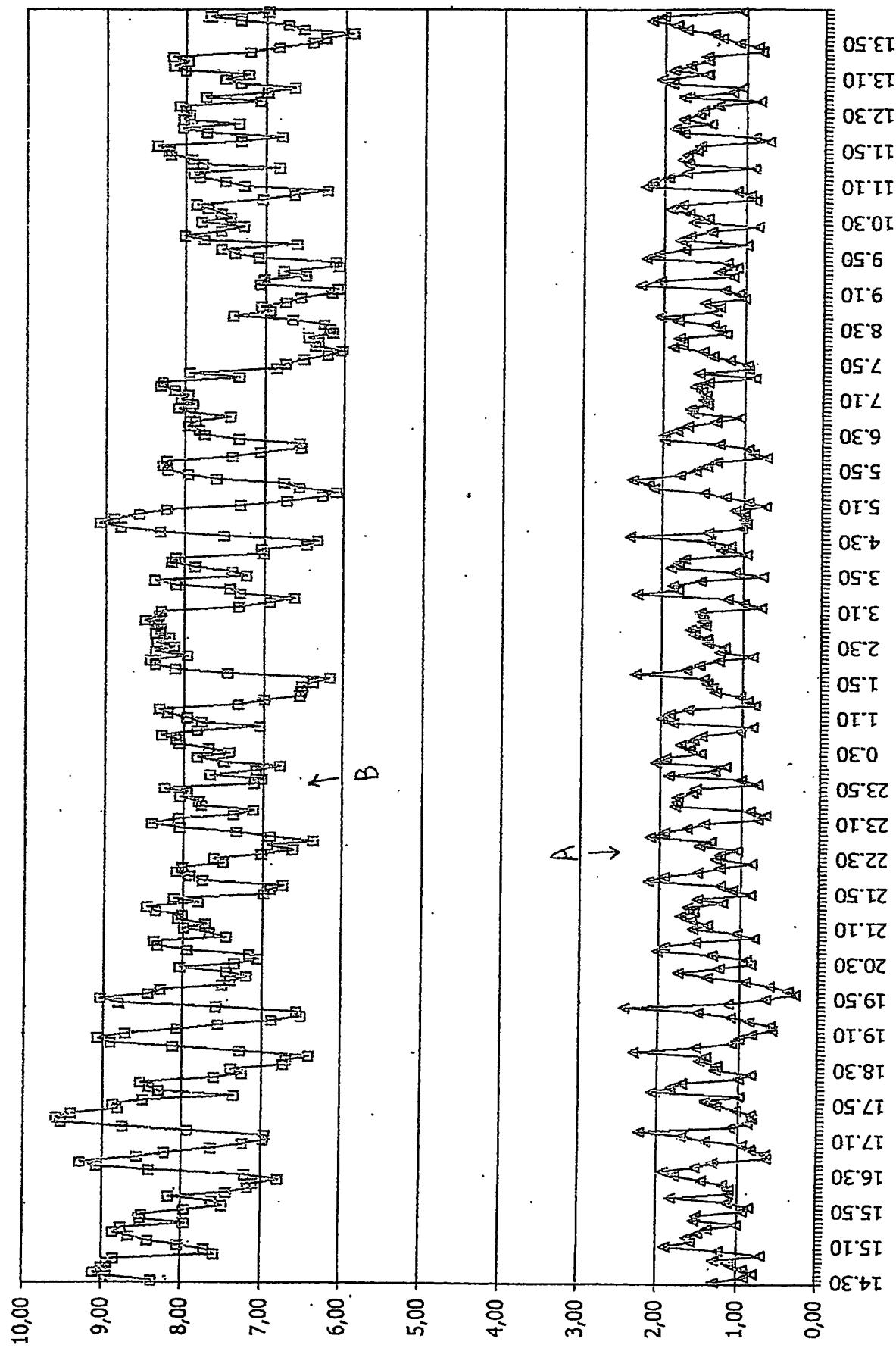


Figure 2

DÉPARTEMENT DES BREVETS

 26 bis, rue de Saint Pétersbourg
 75800 Paris Cedex 08
 Téléphone : 01 53 04 53 04 Télécopie : 01 42 93 59 30

BREVET D'INVENTION
CERTIFICAT D'UTILITÉ

Code de la propriété Intellectuelle - Livre VI

DÉSIGNATION D'INVENTEUR(S) Page N° 1. / 1.

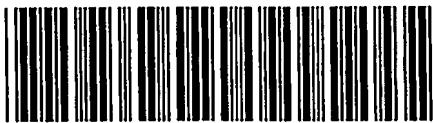
(Si le demandeur n'est pas l'inventeur ou l'unique inventeur)

Cet imprimé est à remplir lisiblement à l'encre noire

DB 113 W /260899

Vos références pour ce dossier (facultatif)		S 2003/42	
N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL		03.13370	
TITRE DE L'INVENTION (200 caractères ou espaces maximum) Catalyseur et procédé en phase gazeuse utilisant un tel catalyseur			
LE(S) DEMANDEUR(S) : SOLVAY (Société Anonyme) Rue du Prince Albert, 33 B - 1050 BRUXELLES Belgique			
DESIGNE(NT) EN TANT QU'INVENTEUR(S) : (Indiquez en haut à droite «Page N° 1/1» S'il y a plus de trois inventeurs, utilisez un formulaire identique et numérotez chaque page en indiquant le nombre total de pages).			
Nom		STREBELLE	
Prénoms		Michel	
Adresse	Rue	Rue Sombre, 84	
	Code postal et ville	1150	BRUXELLES (Belgique)
Société d'appartenance (facultatif)			
Nom		PETITJEAN	
Prénoms		André	
Adresse	Rue	Avenue des Liserons, 17	
	Code postal et ville	1020	BRUXELLES (Belgique)
Société d'appartenance (facultatif)			
Nom			
Prénoms			
Adresse	Rue		
	Code postal et ville		
Société d'appartenance (facultatif)			
DATE ET SIGNATURE(S) DU (DES) DEMANDEUR(S) OU DU MANDATAIRE (Nom et qualité du signataire)		Le 30 avril 2004	
SOLVAY (Société Anonyme)		<i>Étienne Marais</i>	

PCT/EP2004/052942



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record.**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.